

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS

LUCIUS BORGES DE SOUZA

Estudo teórico dos efeitos de abertura em Z-scan

São Carlos
2024

LUCIUS BORGES DE SOUZA

Estudo teórico dos efeitos de abertura em Z-scan

Trabalho de conclusão de curso apresentado ao
Instituto de Física de São Carlos da Universidade de
São Paulo para obtenção do título de Bacharel em
Física Computacional.

Orientador: Prof. Dr. Tomaz Catunda – Instituto de
Física de São Carlos.

São Carlos
2024

AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.

RESUMO

Em ótica não linear, uma das grandezas mais relevantes é o índice de refração não linear n_2 , fundamental em fenômenos como auto-focalização e auto-defocalização. A técnica mais amplamente utilizada para medir n_2 é a Varredura-Z (Z-scan), introduzida em 1989 por M. Sheik-Bahae e colaboradores. Neste trabalho, aplicamos o método da Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff (IDFK) para derivar, de forma detalhada, a expressão analítica da técnica Z-scan, investigando sua dependência em relação ao fator de abertura (S) da íris posicionada à frente do detector. Apresentamos resultados inéditos sobre essa expressão e sobre as aproximações frequentemente adotadas em experimentos de Z-scan.

Palavras-chave: Ótica não linear. Z-scan. Medidas de n_2 .

1 INTRODUÇÃO

1.1 O índice de refração não linear

Em um primeiro estudo sobre as propriedades óticas de materiais, podemos pensar que grandezas como o índice de refração são independentes da magnitude dos campos eletromagnéticos presentes no material, sendo essa hipótese suportada por uma série de fenômenos óticos do cotidiano como a dispersão ótica, birrefringência e absorção ótica. Todos esses fenômenos fazem parte da ótica linear, onde as propriedades óticas da matéria são consideradas inalteradas pela ação de campos eletromagnéticos externos. Essa aproximação é correta apenas para campos de magnitudes baixas, em geral menores que o campo atômico ($\sim 10^9$ V/cm). Ao se atingir magnitudes da ordem do campo atômico, os fenômenos gerados pela interação da luz com a matéria passam a fazer parte da ótica não linear.

A partir do desenvolvimento do laser em 1960 por Maiman¹, foi possível observar pela primeira vez que luz com altas intensidades poderia provocar mudanças nas propriedades óticas de um meio, alterando por exemplo o seu índice de refração e coeficiente de absorção. Com o surgimento do laser, a possibilidade de se usar feixes monocromáticos e coerentes de altas intensidades fez o campo da ótica não linear crescer rapidamente. Em 1961, Franken e seus colaboradores² incidiram luz de um laser de rubi (694 nm) em um cristal de quartzo (SiO₂), e ao analisarem a radiação emergente do cristal em um espectrômetro, observaram a presença de duas frequências, uma idêntica à frequência do feixe incidente e a outra com o dobro da frequência do laser. Esse fenômeno ficou conhecido como geração de segundo harmônico e marcou o nascimento da ótica não linear. Após esses resultados, uma série de outros fenômenos não lineares foram observados em diversos materiais como vidros³, semicondutores⁴ e materiais orgânicos⁵.

De maneira bem simples, para descrever quantitativamente esses fenômenos, podemos descrever a susceptibilidade elétrica de um meio por uma série de potências do campo elétrico aplicado no material:

$$\chi(E(t)) = \chi^{(1)} + \chi^{(2)}E(t) + \chi^{(3)}E^2(t) + \dots \quad (1.1.1)$$

Sendo assim, a polarização elétrica do meio pode ser escrita da seguinte forma:

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi(E(t)) \cdot E(t) = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} + \chi^{(2)} E(t) + \chi^{(3)} E^2(t) + \dots) E(t) \quad (1.1.2)$$

O termo $\chi^{(1)}$ é a susceptibilidade linear e é muito maior que os termos de ordem mais alta, ele representa as propriedades lineares do material como o índice de refração linear, absorção e birrefringência, como citado anteriormente. O termo $\chi^{(2)}$ é responsável por exemplo, pela geração de segundo harmônico (SHG) e para meios homogêneos e isotrópicos possui valor nulo. Para verificar esse resultado, basta observar que para esses meios, a polarização deve inverter o sinal se a direção do campo elétrico aplicado for invertida, sendo assim, todos os termos pares ($\chi^{(2n)}$) devem se anular. Para esses materiais, o termo de menor ordem da equação é $\chi^{(3)}$, e será o termo mais importante nesse trabalho pois é responsável pelo chamado índice de refração não linear (n_2) do material.

Se considerarmos que $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ e usarmos a Identidade de Euler, é possível mostrar que:

$$P^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) = \varepsilon_0 \left(\frac{1}{4} \chi^{(3)} E_0^3 \cos(3\omega t) + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^3 \cos(\omega t) \right) \quad (1.1.3)$$

O primeiro termo determina a geração de terceiro harmônico, ou seja, uma resposta do sistema na frequência 3ω . Já o segundo termo, que mantém a frequência da onda incidente, leva ao aumento da susceptibilidade do material em ω dada por:

$$\Delta\chi = \frac{3}{2} \frac{\chi^{(3)}}{n_0 \varepsilon_0 c} I \quad (1.1.4)$$

Usando que $n^2 = 1 + \chi$, um aumento $\Delta\chi$ leva a um pequeno incremento no índice de refração $\Delta n \approx \Delta\chi/2n$:

$$\Delta n = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{n_0^2 \varepsilon_0^2 c} I = n_2 I \quad (1.1.5)$$

Então a variação do índice de refração é função da intensidade da luz:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.1.6)$$

em que n_2 é o chamado índice de refração não linear.

É importante notar que n_2 é um número complexo e a sua parte real corresponde à refração, enquanto a sua parte imaginária está relacionada ao coeficiente de absorção do meio. Não somente a refração está relacionada com a intensidade, mas também o coeficiente de absorção do material, que pode ser escrito da forma:

$$A = \alpha + \beta I \quad (1.1.7)$$

onde A é coeficiente de absorção do material, α o coeficiente de absorção linear e β o coeficiente de absorção não linear.

Os mecanismos físicos responsáveis pelo surgimento de n_2 são os mais diversos, como efeitos térmicos, eletrônicos, nucleares etc. Cada efeito possui uma escala de tempo característica que permite a sua identificação e determina as aplicabilidades do material em dispositivos óticos.

1.2 Efeitos de lente

A variação do índice de refração em função da intensidade da luz gera uma série de fenômenos distintos, e dentre estes se encontram os efeitos de lente, que também são classificados como efeitos de auto-modulação. Neles a presença da luz laser cria um gradiente de índice de refração no material, que promove uma mudança no raio de curvatura da frente de onda do laser, gerando assim como uma lente convencional, a convergência ou divergência do feixe que incide sob o material.

Para entender esse efeito, temos que primeiramente entender o funcionamento de uma lente convencional. Esses elementos óticos são feitos em geral de um mesmo material (vidro na maioria das aplicações) que possui um índice de refração superior ao ar (~ 1.5). O formato da lente é especialmente importante para o seu funcionamento, sendo as lentes convergentes mais espessas no centro que nas bordas, e o contrário para as lentes divergentes. Esse formato faz com que uma onda eletromagnética ao atravessar o elemento, adquira uma fase dependente da distância em relação ao seu eixo de propagação. Como o avanço da onda é feito pelo movimento contínuo de suas frentes de onda, a única solução para que tanto os pontos no centro, como os pontos na borda da lente continuem fazendo parte da mesma frente de onda, é que o raio de curvatura se altere.

Nas lentes convergentes, essa fase é maior no centro do que nas bordas, aumentando a curvatura da frente de onda. Para as lentes divergentes, a fase é menor no centro do que nas bordas da lente, fazendo a onda divergir. O parâmetro relevante nesse fenômeno é a fase adquirida pela onda, que é proporcional ao produto do índice de refração pela distância de propagação da onda no meio (caminho ótico) e todos os pontos da frente de onda possuem a mesma diferença de caminho ótico. Efeito idêntico pode ser alcançado em um material que possuem uma seção quadrada ou retangular, mas que o seu índice de refração varia à medida que se desloca do centro para as bordas (Figura 1).

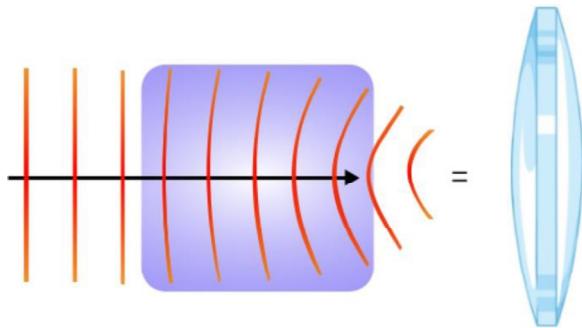


Figura 1: Ilustração do efeito de lente induzido. A variação do índice de refração ao longo da seção transversal do material produz efeito idêntico ao de uma lente convergente.

Fonte: Referência¹².

A variação do índice de refração em relação à distância do eixo de propagação do laser é a responsável pelo efeito de lente induzido, mas isso se deve ao perfil de intensidade do laser. A maioria dos lasers feitos para uso científico possuem um perfil de intensidade gaussiano ao longo da sua seção transversal (**Seção 2.2**), portanto a dependência do índice de refração com a posição surge simplesmente da aproximação em que a variação de índice de refração é diretamente proporcional à intensidade da luz.

Uma das principais técnicas para medir o índice de refração não linear (parte real e imaginária) explora justamente esses efeitos de lente devido à interação não linear com a luz, e será discutido na próxima seção.

1.3 Z-can (Varredura Z)

Dentre as várias técnicas em espectroscopia não linear, a técnica de Z-scan se destaca por sua montagem experimental simples e sua alta sensibilidade. Foi apresentada por Mansoor Sheik Bahae

et al⁶ em 1989 e desde o começo da década de 90, se tornou uma das principais técnicas utilizadas em ótica não linear.

A ideia principal da técnica é correlacionar a intensidade da luz que incide sob uma amostra, com a posição em que ela se encontra em relação ao foco do laser. O esquema do procedimento está ilustrado na Figura 2, onde a luz laser que promove o efeito não linear incide sobre uma lente convergente de distância focal conhecida e atravessa a amostra a ser estudada, incidindo posteriormente em um detector. A amostra é colocada sobre uma plataforma que pode se deslocar ao longo do eixo de propagação do laser (eixo z) e então o sinal do detector é correlacionado com a distância em que a amostra se encontra do foco da lente. A movimentação da amostra tem por objetivo explorar o efeito de lente não linear, pois dependendo da posição da amostra o feixe pode ser focalizado ou desfocalizado, alterando a intensidade medida no detector (Figura 2).

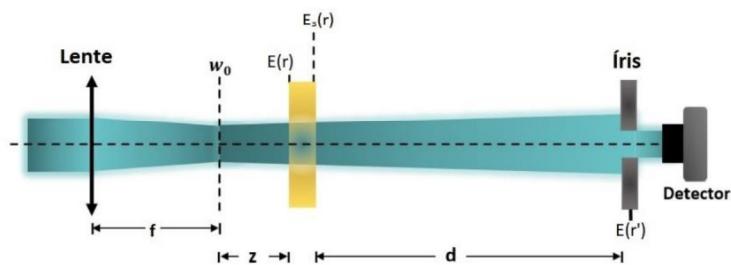


Figura 2 :Esquema da montagem experimental de Z-scan (fenda fechada). A amostra se encontra a uma distância z do foco da lente convergente e a uma distância d do detector, onde o campo elétrico é $E(r')$.

Fonte: Elaborada pelo autor.

Em experimentos de Z-scan, a grandeza medida é a transmitância normalizada T . É definida como a razão da intensidade no detector em $t \rightarrow \infty$ pelo seu valor em $t=0$, ou seja, é o valor de intensidade no estado estacionário, quando o efeito não linear já não apresenta variação temporal, dividido pelo valor da intensidade no instante inicial, quando há somente efeitos lineares. Para realizar as medidas de Z-scan, existem duas configurações distintas, as configurações de fenda aberta e fenda fechada. A configuração de fenda fechada corresponde a fazer as medidas com uma abertura (íris) posicionada à frente do detector e alinhada ao centro do laser, essa configuração é sensível tanto à refração quanto à absorção não lineares, já a fenda aberta, corresponde a medidas sem a abertura e

produz um sinal que depende apenas da absorção não linear. As curvas características de Z-scan estão demonstradas na figura abaixo.

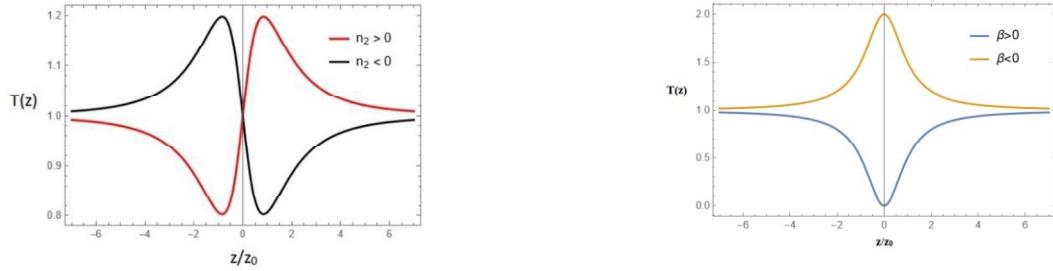


Figura 3: Curvas características de Z-scan. O gráfico à esquerda representa a configuração de fenda fechada para uma não linearidade puramente refrativa, enquanto o gráfico à direita representa a configuração de fenda aberta.

Fonte: Elaborada pelo autor.

É importante notar que o pico e o vale da configuração de fenda fechada, correspondem respectivamente aos momentos em que o feixe apresentou menor e maior divergência em relação ao instante inicial. Para entender esse fenômeno, basta perceber que pelo fato de a potência do laser ser constante, à medida que a área efetiva do feixe varia devido ao efeito de lente, a intensidade do feixe deve contrabalancear o efeito para manter o produto $P=I \cdot A$ constante. Destacada na seção anterior, a grandeza mais importante nesses efeitos é a fase adquirida pela onda ao atravessar a amostra, neste caso, a luz laser adquire uma fase devido ao efeito não linear, que é medida nos experimentos de Z-scan através de um ajuste da curva teórica aos dados experimentais. Obtendo-se a fase não linear é possível calcular o índice de refração n_2 do material.

Em seu artigo, Sheik-Bahae⁷ apresentou uma expressão analítica para a transmitância normalizada considerando uma abertura (íris) infinitesimal e apenas efeitos refrativos não lineares, dada pela equação abaixo:

$$T(x) = 1 + \frac{4x\Delta\phi_0}{(1+x^2)(9+x^2)} \quad (1.3.1)$$

Os parâmetros z_0 e $\Delta\phi_0$ são respectivamente o parâmetro confocal ou parâmetro de Rayleigh do laser (**Seção 2.2**), e a fase não linear adquirida pelo laser no foco. A demonstração dessa expressão será feita na seção 3.1, mas podemos tirar resultados importantes da Eq.(1.3.1), como os pontos de

máximo e mínimo da função. É possível mostrar que as distâncias no eixo y e x desses pontos satisfazem as seguintes equações:

$$\Delta T_{p-v} = 0.406\Delta\phi_0 \quad (1.3.2)$$

$$\Delta Z_{p-v} = 1.718 z_0 \quad (1.3.3)$$

Essas expressões são válidas para aberturas infinitesimais, ou seja, muito menores que o diâmetro do laser, no entanto, em experimentos de Z-scan as aberturas possuem um tamanho comparável ao “spot” do laser e essas expressões passam a não descrever corretamente os resultados experimentais. Considerando essa situação, Sheik-Bahae et al⁷ propuseram à partir de dados experimentais, uma expressão que relaciona ΔT_{p-v} com a fração da potência transmitida pela abertura (S):

$$\Delta T_{p-v} = 0.406\Delta\phi_0(1 - S)^{0.25} \quad (1.3.4)$$

Este trabalho busca estudar como se dá a variação do sinal de Z-scan em função da abertura, analisando por exemplo, a validade da expressão acima.

2 MATERIAIS E MÉTODOS

2.1 Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff

A difração é um fenômeno ondulatório, no qual uma onda ao encontrar um determinado obstáculo, ou seja, quando parte da frente de onda é obstruída, apresenta padrões específicos de interferência, dando origem a faixas claras e escuras na chamada região de sombra geométrica do objeto. É através da difração que descrevemos a propagação espacial de um feixe luminoso como o laser e a propagação de uma onda por elementos ópticos, como uma lente.

A principal ferramenta matemática para descrever a difração é a chamada Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff (IDFK), onde cada ponto da abertura (fenda) é considerado como uma fonte de ondas esféricas secundárias e a superposição dessas diversas ondas gera a expressão do campo no ponto P de interesse (Eq.(2.1.1)). A Figura 4 ilustra esse processo, onde o plano (x,y) é o plano de

origem da onda e queremos calcular o campo no plano (x', y') . Os cálculos apresentados nessa seção serão de extrema importância para o tratamento teórico da técnica de Z-scan.

$$E(x', y') = \frac{i}{\lambda} \iint_S \frac{e^{-i\vec{k} \cdot \vec{d}_{01}}}{d_{01}} E_0(x, y) dx dy \quad (2.1.1)$$

Sabendo o campo da fonte $E_0(x, y)$, é possível obter a expressão do campo em um ponto P a certa distância do elemento difrativo. No caso da técnica de Z-scan, estaremos interessados na expressão do campo após ter percorrido a amostra em análise, o plano de origem será a face de saída da amostra, enquanto o plano de observação será o plano da abertura.

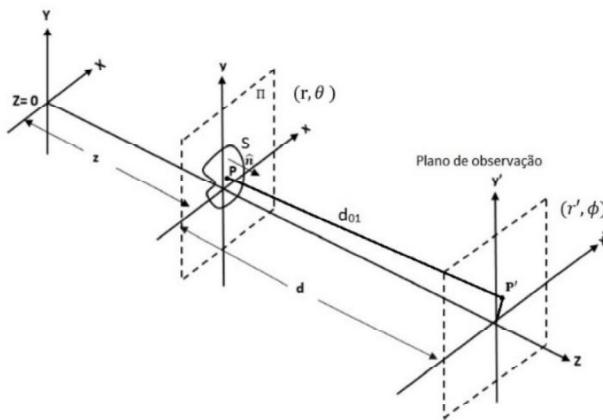


Figura 4: Esquema dos eixos coordenados utilizados no cálculo da integral de difração de Fresnel-Kirchhoff.

Fonte: Elaborada pelo autor.

2.2 Feixe gaussiano

Como descrito na seção 1.2, os efeitos de lente estudados em Z-scan são consequência direta da distribuição de intensidade do laser. Em geral, o feixe emitido nas saídas dos lasers comerciais é gaussiano no modo TEM_{00} (transversal elétrico e magnético), esse é o modo mais simples de oscilação da luz em uma cavidade ressonante, é uma das soluções da equação de onda do campo eletromagnético para um feixe com simetria radial, satisfazendo condições de contorno periódicas na cavidade óptica onde a radiação laser é produzida. Considerando um feixe gaussiano de ordem zero (TEM_{00}) se propagando na direção z, o perfil radial do campo elétrico e da intensidade são dados por:

$$E(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left\{ \frac{r^2}{w^2(z)} \right\} \exp \left\{ -i \left[kz + \frac{kr^2}{2R(z)} - \arctan(z/z_0) \right] \right\} \quad (2.2.1)$$

$$I(r, z) = |E(r, z)|^2 = \frac{2P}{\pi w_0^2} \cdot \left(\frac{w_0}{w(z)} \right)^2 \exp \left(\frac{-2r^2}{w^2(z)} \right) \quad (2.2.2)$$

onde $R(z) = z(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2)$, é o raio de curvatura da frente de onda, $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}$ o raio do feixe (medido do centro $r = 0$ ao ponto onde a intensidade é $1/e^2$ de seu valor máximo), w_0 é o raio do feixe (ou cintura) no ponto z de máxima intensidade axial e z_0 é o chamado parâmetro confocal do feixe, que representa a distância que o feixe percorre até que sua área transversal dobre à partir da cintura.

Aplicando a IDFK para o feixe gaussiano em coordenadas cilíndricas¹¹ chegamos na seguinte expressão:

$$E_a(r') = A' \exp \left[\frac{-ikr'^2}{2d} \right] \int_0^\infty \exp [-\rho^2(1 + iv)] J_0(\psi\rho) \rho d\rho \quad (2.2.3)$$

Onde $\rho = \frac{r}{w}$ e $v = \frac{kw^2}{2} \left(\frac{1}{d} + \frac{1}{R} \right)$ são quantidades adimensionais convenientes, J_0 é a função de Bessel de ordem zero e $A' = \frac{ik}{d} E_0 w_0 w(x) \exp \left[-i (kd + \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_0} \right)) \right]$. Esses resultados serão extremamente importantes para o tratamento teórico da técnica de Z-scan.

3 RESULTADOS

3.1 Z-scan

Ao atravessar o meio (amostra), o feixe gaussiano sofre os efeitos da refração e absorção não lineares. Para encontrar a expressão do campo na saída da amostra, devemos calcular a fase não linear adquirida pelo feixe e a amplitude do campo. Usando que o coeficiente de absorção do meio $A(I) = \alpha + \beta I$, temos que a variação de intensidade da luz em função da posição é dada pela equação:

$$\frac{dI}{dz} = -(\alpha I + \beta I^2) \quad (3.1.1)$$

Resolvendo a equação diferencial e assumindo que a espessura da amostra é bem menor que o parâmetro confocal z_0 do laser (aproximação de amostra fina), obtemos a amplitude do campo na saída da amostra:

$$I_s(r, z) = \frac{I(r, z) e^{-\alpha z}}{1 + \beta I(r, z) L_{eff}} \quad (3.1.2)$$

$$\text{com } L_{eff} = \frac{1 - e^{-\alpha z}}{\alpha}.$$

Usando a expressão acima conseguimos obter o campo elétrico na saída da amostra:

$$E_s(r, z) = \frac{E(r, z) e^{-\alpha L/2} e^{i\Delta\phi(r, z)}}{\sqrt{1 + \beta L_{eff} I(r, z)}} \quad (3.1.3)$$

Para obtermos a fase não linear, basta resolver a equação abaixo considerando a aproximação de amostra fina:

$$\Delta\phi(r, z) = k \int_0^L \Delta n(r, z) dz = \frac{kn_2}{\beta} \ln[1 + q(r, z)] \quad (3.1.4)$$

$$\text{com } q(r, z) = \beta L_{eff} I(r, z).$$

Combinando os resultados obtidos anteriormente e considerando que a fase não linear $\Delta\phi \ll 1$, obtemos o campo elétrico $E_s(r, z)$:

$$E_s(r, z) = E(r, z) e^{-\alpha L/2} \left[1 - \frac{1}{2} q(r, z) + i k n_2 I(r, z) L_{eff} \right] \quad (3.1.5)$$

Podemos reescrever a expressão acima definindo alguns parâmetros importantes:

$$\Delta\phi_0 \equiv k n_2 L_{eff} \frac{2P}{\pi w_0^2} \quad (3.1.6)$$

$$q_0 \equiv \beta L_{eff} \frac{2P}{\pi w_0^2} \quad (3.1.7)$$

Com essas novas definições podemos reescrever o campo elétrico da seguinte forma:

$$E_s(r, z) = E(r, z) e^{-\alpha L/2} \left[1 - \frac{q_0}{2(1+x^2)} \exp(-2\rho^2) + i \frac{\Delta\phi_0}{1+x^2} \exp(-2\rho^2) \right] \quad (3.1.8)$$

$$\text{onde } x = \frac{z}{z_0}.$$

A amplitude do campo elétrico $E_a(r')$ no plano da abertura (plano de detecção) pode ser calculada tanto pelo método de decomposição gaussiana⁷ quanto pela integral de difração de Fresnel-Kirchhoff⁸. Utilizando os resultados da seção passada para a propagação de um feixe gaussiano, basta substituir a expressão do campo elétrico na integral de difração. Podemos notar que o campo no plano de observação será obtido pela superposição de três termos $E_a(r') = \varepsilon_a(r') + \delta\varepsilon_a^r(r') + \delta\varepsilon_a^{abs}(r')$. O primeiro termo corresponde ao feixe gaussiano inalterado pelo efeito não linear e que foi obtido na seção passada:

$$\varepsilon_a(r') = A' \exp \left[\frac{-ikr'^2}{2d} \right] \int_0^\infty \exp[-\rho^2(1+iv)] J_0(\psi\rho) \rho d\rho \quad (3.1.9)$$

Cuja solução da integral resulta em:

$$\varepsilon_a(r') = \frac{A'}{2(1+iv)} \exp \left(-\frac{\psi^2}{4(1+iv)} - \frac{ikr'^2}{2d} \right) \quad (3.1.10)$$

O segundo termo da Eq.(3.1.8) é o campo devido à refração não linear:

$$\begin{aligned} \delta\varepsilon_a^r(r') &= i \frac{\Delta\phi_0}{1+x^2} A' \exp \left[\frac{-ikr'^2}{2d} \right] \int_0^\infty \exp[-\rho^2(3+iv)] J_0(\psi\rho) \rho d\rho = \\ &= iA' \frac{\Delta\phi_0}{1+x^2} \frac{\exp \left[\frac{-\psi^2}{4(3+iv)} - \frac{ikr'^2}{2d} \right]}{2(3+iv)} \end{aligned} \quad (3.1.11)$$

O último termo é devido à absorção não linear:

$$\begin{aligned}\delta \varepsilon_a^{abs}(r') &= -\frac{q_0}{2(1+x^2)} A' \exp \left[\frac{-ikr'^2}{2d} \right] \int_0^\infty \exp [-\rho^2(3+iv)] J_0(\psi\rho) \rho d\rho = \\ &= -iA' \frac{q_0}{2(1+x^2)} \frac{\exp \left[\frac{-\psi^2}{4(3+iv)} - \frac{ikr'^2}{2d} \right]}{2(3+iv)}\end{aligned}\quad (3.1.12)$$

A superposição ou interferência dos três campos leva à expressão característica de Z-scan.

3.1.1 Transmitância normalizada

A transmitância normalizada é definida como a razão entre a potência transmitida pela abertura com os efeitos não lineares, pela potência linear transmitida. Levando em conta que a intensidade do campo é proporcional a sua magnitude ao quadrado e esse valor deve ser integrado sobre a abertura, temos a seguinte expressão para a transmitância normalizada T:

$$T = \frac{\int_0^{r_a} |\varepsilon_a(r') + \delta \varepsilon_a^r(r') + \delta \varepsilon_a^{abs}(r')|^2 \cdot 2\pi r' dr'}{\int_0^{r_a} |\varepsilon_a(r')|^2 \cdot 2\pi r' dr'} \quad (3.1.13)$$

onde r_a é o raio da abertura (íris).

Substituindo a variável r' por $\rho' = \frac{r'}{w_a}$, onde w_a é o raio do feixe no plano de detecção, e desprezando termos de segunda ordem nas magnitudes dos campos $|\delta \varepsilon_a^r(r')|$ e $|\delta \varepsilon_a^{abs}(r')|$, podemos reescrever a transmitância como:

$$T = \frac{T_0 + \delta T_r + \delta T_{abs}}{T_0} = 1 + \frac{\delta T_r}{T_0} + \frac{\delta T_{abs}}{T_0} \quad (3.1.14)$$

onde $T_0 = \int_0^{\rho_a} |\varepsilon_a(\rho')|^2 \cdot \rho' d\rho'$, $\delta T_r = 2 \cdot \text{Re} \left\{ \int_0^{\rho_a} \varepsilon_a(\rho')^* \delta \varepsilon_a^r(r') \cdot \rho' d\rho' \right\}$ e $\delta T_{abs} = 2 \cdot \text{Re} \left\{ \int_0^{\rho_a} \varepsilon_a(\rho')^* \delta \varepsilon_a^{abs}(r') \cdot \rho' d\rho' \right\}$.

Substituindo Eqs.(3.1.10) até (3.1.12) em Eq.(3.1.14) obtemos expressões para T_0 e δT_r :

$$T_0 = \frac{|A'|^2}{4(1+v^2)} \int_0^{\rho_a} \exp(-2\rho'^2) \cdot \rho' d\rho' = \frac{|A'|^2}{16(1+v^2)} \cdot (1 - \exp(-2\rho_a^2)) \quad (3.1.15)$$

$$\delta T_r = \frac{-|A'|^2 \cdot \Delta\phi_0}{16(1+x^2)(1+\nu^2)} \operatorname{Re} \left\{ i \left(1 - \exp \left(\frac{-4(3+\nu^2)\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \exp \left(\frac{-8i\nu\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \right) \right\} \quad (3.1.16)$$

Similarmente, δT_{an} resulta em:

$$\delta T_{\text{abs}} = \frac{-|A'|^2 \cdot q_0}{32(1+x^2)(1+\nu^2)} \operatorname{Re} \left\{ \left(1 - \exp \left(\frac{-4(3+\nu^2)\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \exp \left(\frac{-8ix\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \right) \right\} \quad (3.1.17)$$

Após algumas manipulações algébricas, chegamos no valor da transmitância normalizada $T(\rho_a, \nu)$:

$$T(\rho_a, \nu) = 1 + \frac{\exp \left[\frac{-4(3+\nu^2)\rho_a^2}{9+\nu^2} \right] \cdot \left[2 \cdot \sin \left(\frac{8\nu\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \cdot \Delta\phi_0 + \cos \left(\frac{8\nu\rho_a^2}{9+\nu^2} \right) \cdot q_0 \right] - q_0}{2(1+x^2)(1 - \exp(-2\rho_a^2))} \quad (3.1.18)$$

Vale notar que o parâmetro ν assume uma forma bem diferente no regime do campo distante. Para valores de $d \gg z_0$, a IDFK se reduz à expressão de Franhouffer para a difração e então podemos usar $\nu \approx x$. Com isso, analisando a Eq.(3.1.18) no campo distante para o caso em que $\rho_a \ll 1$, podemos aproximar $\sin \left(\frac{8x\rho_a^2}{9+x^2} \right) \approx \frac{8x\rho_a^2}{9+x^2}$, $\exp(-2\rho_a^2) \approx 1 - 2\rho_a^2$ e $\cos \left(\frac{8x\rho_a^2}{9+x^2} \right) \approx 1$. Tomando o limite $\rho_a \rightarrow 0$ e desconsiderando a absorção ($q_0 = 0$), obtemos a expressão de Z-scan para uma abertura infinitesimal obtida por Sheik-Bahae⁷ (Eq.(1.3.1)).

Definindo a transmitância linear $S = 1 - \exp(-2\rho_a^2)$, podemos reescrever a Eq.(3.1.18) na forma como foi obtida por Chapple et al⁸:

$$T(S, \nu) = 1 + \frac{(1 - S)^{\mu(\nu)} (2 \cdot \sin(\varphi(S, \nu)) \Delta\phi_0 + \cos(\varphi(S, \nu)) q_0) - q_0}{2 \cdot (1 + x^2) S} \quad (3.1.19)$$

$$\mu(\nu) = \frac{2(3 + \nu^2)}{9 + \nu^2}$$

$$\varphi(S, \nu) = \frac{-4\nu \ln(1 - S)}{9 + \nu^2}$$

É importante notar que se substituirmos $S=1$ na Eq.(3.1.19), recuperamos a expressão teórica para o sinal da fenda aberta (sem abertura):

$$T_{\text{oa}}(S, x) = 1 - \frac{q_0}{2(1 + x^2)} \quad (3.1.20)$$

A Eq.(3.1.19) descreve o sinal de Z-scan para qualquer abertura e possui algumas características interessantes que serão discutidas na próxima seção.

3.2 Efeito puramente refrativo

Inicialmente consideraremos o caso de não-linearidade puramente refrativa, ou seja, $q_0 = 0$. A Figura 5 representa a transmitância normalizada dada pela Eq.(3.1.19) para ($S=0, 0.2, 0.5, 0.7, 0.9$).

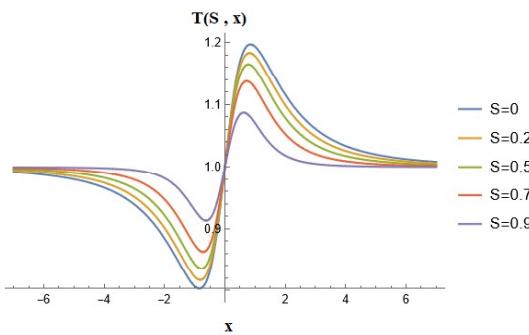


Figura 5: Gráfico da transmitância normalizada dada pela Eq.(3.1.19) para $q_0 = 0$ e $S=0, 0.2, 0.5, 0.7$ e 0.9 .

Fonte: Elaborada pelo autor.

Pelo gráfico é possível notar que a variação de transmitância entre o pico e o vale (ΔT_{p-v}) é reduzida à medida que o fator de abertura S aumenta, esse comportamento foi observado experimentalmente por Sheik-Bahae⁷ e através da análise do seus dados propôs a Eq.(1.3.4).

Pela Figura 5 percebemos que não somente ΔT_{p-v} varia com o parâmetro S , mas também a distância entre o pico e o vale ΔZ_{p-v} , algo que ainda não tinha sido reportado na literatura. Para estudar essas variações em função do parâmetro de abertura (S), determinei numericamente através do software Mathematica⁹, os pontos de máximo e mínimo de $T(S, x)$ para diversos valores de S , e à partir desses pontos os valores de ΔT_{p-v} e ΔZ_{p-v} foram determinados. Os resultados estão

representados na Figura 6, onde os pontos em vermelho representam os resultados obtidas por Sheik-Bahae (Eq.(1.3.4)) e os pontos em preto, o resultado numérico.

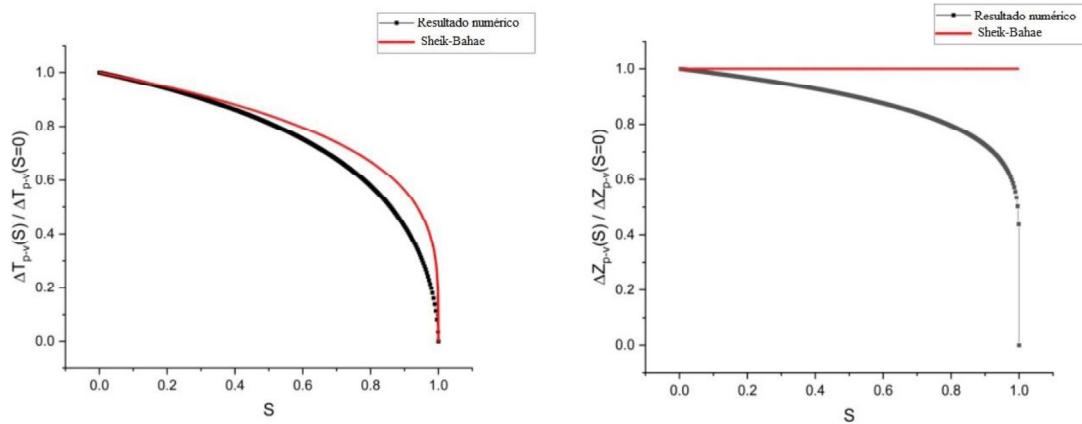


Figura 6: Resultados numéricos para ΔT_{p-v} e ΔZ_{p-v} em função do parâmetro S . As curvas em vermelho indicam as expressões obtidas por S.Bahae⁷ enquanto os resultados numéricos da Eq.(3.1.19) estão representados em preto.

Fonte: Elaborada pelo autor.

Podemos observar que as expressões obtidas por Sheik-Bahae apresentam pouca divergência com relação aos resultados numéricos para valores de $S < 0.2$, isso tinha sido reportado por Yao et al¹⁰, que concluiu que ΔZ_{p-v} permanecia aproximadamente constante para valores de $S < 0.2$. As variações de ΔT_{p-v} e ΔZ_{p-v} impactam diretamente a determinação do índice de refração não linear (n_2), pois $n_2 \propto \Delta T_{p-v} \cdot \Delta Z_{p-v}$. Desta maneira, o ajuste dos dados experimentais com a expressão para $S=0$ (Eq.(1.3.1)) resulta em um valor de n_2 menor que o “valor real”, ou seja, calculado com a expressão completa, Eq.(3.1.19) . Para ilustrar esse efeito, a Tabela 1 apresenta a diferença em porcentagem destes valores, δn_2 .

Tabela 1: Variação em porcentagem do índice de refração n_2

S	$\delta n_2 (%)$
0	0
0.1	1.6
0.2	3.6
0.5	12.8
0.7	23.1

Podemos perceber pela Tabela 1 que para $S=0.5$, um valor muito utilizado em experimentos de Z-scan, o valor de n_2 é 12.8% maior que o valor obtido pela Eq.(1.3.4).

3.2.1 Efeito absorutivo

Um procedimento muito utilizado em medidas de Z-scan é a divisão dos dados da fenda fechada pelos dados da fenda aberta, essa metodologia foi introduzida por Sheik-Bahae et al⁷ e tem por objetivo obter dados sensíveis apenas à refração não linear. Usando as Eq.(3.1.19) e (3.1.20), é possível analisar esse efeito dividindo-se uma equação pela outra:

$$T_{nor}(S, x) = \frac{T(S, x)}{T_{oa}(x)} = 1 + \Delta\phi_0 \frac{(1 - S)^{\mu(x)} [\sin(\varphi(S, x)) + \cos(\varphi(S, x)) \cdot \varepsilon] - \varepsilon \cdot (1 - S)}{(1 + x^2) S} \quad (3.2.1)$$

onde $\varepsilon = \frac{q_0}{2\Delta\phi_0}$.

Na Eq.(3.2.1) usamos a aproximação $(1 - x)^{-1} \approx 1 + x$, visto que o termo proporcional a q_0 é muito pequeno. Se observarmos atentamente a Eq.(3.2.1), podemos notar que esse termo foi reduzido pelo fator $(1-S) < 1$, o que demonstra que para valores de $\varepsilon \ll 1$, o procedimento de divisão aproxima os resultados de uma medida puramente refrativa ($q_0 = 0$). A Figura 7 representa o gráfico das Eq.(3.1.19) e (3.2.1) para $S=0.4$ e $\varepsilon = -0.36$, podemos ver uma diferença significativa entre a função puramente refrativa ($q_0 = 0$) e a função normalizada.

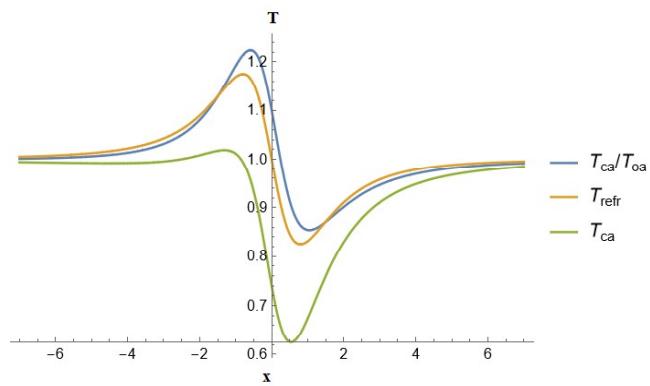


Figura 7: Gráfico das Eq.(3.1.19) e (3.2.1) para $S=0.4$ e $\varepsilon = -0.36$. A função em verde representa a transmitância normalizada da fenda fechada, a função em laranja representa a expressão puramente refrativa ($q_0 = 0$) e em azul o resultado obtido pela divisão da fenda fechada pela fenda aberta.

Fonte: Elaborada pelo autor.

A Figura 8 mostra os resultados numéricos do produto $\Delta T_{p-v} \cdot \Delta Z_{p-v}$ em função de ε , dividido pelo mesmo produto obtido com a função puramente refrativa.

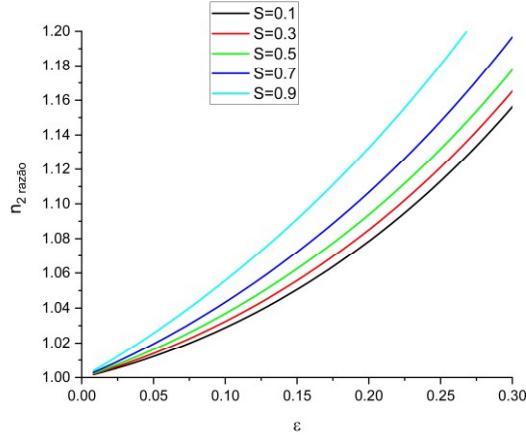


Figura 8: Resultados numéricos para o produto $\Delta T_{p-v} \cdot \Delta Z_{p-v}$ em função de ε , dividido pelo valor obtido com a função puramente refrativa.

Fonte: Elaborada pelo autor.

Podemos observar pela Figura 8 que para $\varepsilon < 0.15$ a diferença nos valores de n_2 é menor que 10% para todos os valores de S . Podemos concluir que o procedimento de divisão é adequado para valores de $\varepsilon < 0.02$, onde o procedimento reproduz resultados praticamente idênticos aos obtidos pela expressão de Z-scan puramente refrativa e para absorções maiores, o ajuste dos dados experimentais deve ser feito com a expressão completa (Eq.(3.1.19)).

4 CONCLUSÕES E CONSIDERAÇÕES FINAIS

Neste trabalho busquei apresentar de forma detalhada a demonstração da expressão da transmitância normalizada de Z-scan em função da abertura do detector, e explorei alguns aspectos da função que não tinham sido apresentados até o momento na literatura, como a variação da distância entre o pico e o vale ΔZ_{p-v} em função do parâmetro S . Espero que o uso da Eq.(3.1.19) para o ajuste dos dados experimentais possa trazer uma menor divergência entre os valores de n_2 obtidos por Z-scan e esclarecido os limites de validade do procedimento de divisão dos dados da fenda fechada pela fenda aberta.

REFERÊNCIAS

1. MAIMAN, T.H. **Stimulated Optical Radiation in Ruby.** *Nature*, v.187, n.4736, p.493-494, 1960.
2. FRANKEN, P.A.; HILL, A.E.; PETERS, C.W.; WEINREICH, G. **Generation of optical harmonics.** *Physical Review Letters*, v.7, n.4, p.118-119, 1961.
3. ANDRADE, A. A. et al. **Time-resolved study of thermal and electronic nonlinearities in Nd³⁺ doped fluoride glasses.** *Electronics Letters*, 1998.
4. SAID, A. A. et al. **Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe.** *Journal of the Optical Society of America B*, 1992.
5. WEI, T.-H. et al. **Signs of nonlinear refraction in chloroaluminum phthalocyanine solution.** *Applied Physics Letters*, 1998.
6. SHEIK-BAHAE, M. et al. **High-sensitivity, single-beam n₂ measurements.** *Optics Letters*, v. 14, n. 17, p. 955–957, 1989.
7. SHEIK-BAHAE, M. et al. **Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam.** *IEEE journal of quantum electronics*, v. 26, n. 4, p. 760–769, 1990.
8. CHAPPLE, P.B.; STAROMLYNSKA, J.; HERMANN, J.A.; MCKAY, T.J.; McDUFF, R.G. **Single-Beam Z-scan: Measurement techniques and analysis.** *Journal of Nonlinear Optical Physics and Material*, v.6, n.3, p.251-293, 1997
9. Wolfram Research, Inc., *Mathematica*, Version 13.3, Champaign, IL (2024).
10. YAO, B.: REN, L.: HOU, X. **Z-scan theory based on a diffraction model.** *Journal of Optical Society of America B*, v.20, n.6, p. 1290-1294, 2003.
11. COSTA, Gláucia Grüninger Gomes. **Espectrometria de lente térmica em sólidos: teoria e aplicações.** 2005. Tese (Doutorado em Física Aplicada) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2005.
12. Gupta, N., Kumar, S., Gnaneshwaran, A. et al. **Self-focusing of cosh-Gaussian laser beam in collisional plasma: effect of nonlinear absorption.** *J Opt* 50, 701–711 (2021)